

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平11-508622

(43) 公表日 平成11年(1999) 7月27日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

C 0 9 J 201/00

C 0 9 J 201/00

11/08

11/08

125/10

125/10

133/04

133/04

153/02

153/02

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 24 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平9-504450  
(86) (22) 出願日 平成8年(1996) 6月3日  
(85) 翻訳文提出日 平成9年(1997) 12月26日  
(86) 国際出願番号 PCT/US 96/10423  
(87) 国際公開番号 WO 97/01610  
(87) 国際公開日 平成9年(1997) 1月16日  
(31) 優先権主張番号 60/000, 512  
(32) 優先日 1995年6月26日  
(33) 優先権主張国 米国 (US)  
(31) 優先権主張番号 08/565, 111  
(32) 優先日 1995年11月30日  
(33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 ミネソタ マイニング アンド マニユ  
ファクチャリング カンパニー  
アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427,  
セントポール, ポスト オフィス ボック  
ス 33427, スリーエム センター  
(72) 発明者 ゴエツ, リチャード ジェイ.  
アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427,  
セントポール, ポスト オフィス ボック  
ス 33427  
(74) 代理人 弁理士 石田 敬 (外3名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 光拡散性接着剤

(57) 【要約】

母材と微粒子間の屈折率差の絶対値、すなわち  $|n_1 - n_2|$  が0より大きく通常は0.01から0.2の範囲にある屈折率  $n_2$  を持つ有機重合体微粒子を充填した屈折率  $n_1$  を持つ感圧接着剤母材の混合物を含有する光拡散性接着剤。固形分に基づく母材の微粒子に対する重量比は約1:1から約50:1、好ましくは約4:1から約25:1である。

## 【特許請求の範囲】

1.  $|n_1 - n_2|$  がゼロより大きくなるように屈折率  $n_2$  を持つ有機重合体微粒子を充填した屈折率  $n_1$  を持つ感圧接着剤母材を含有する光拡散性接着剤。

2.  $|n_1 - n_2|$  が 0.01 から 0.2 の範囲にある請求項 1 記載の光拡散性接着剤。

3. 固形分基準で有機重合体微粒子に対する感圧接着剤母材の重量比が約 1 : 1 から約 50 : 1 である混合物から前記接着剤が構成されている請求項 1 記載の光拡散性接着剤。

4. 固形分基準で有機重合体微粒子に対する感圧接着剤母材の重量比が約 4 : 1 から約 25 : 1 である混合物から前記接着剤が構成されている請求項 3 記載の光拡散性接着剤。

5. 前記感圧接着剤母材がフィルム形成性あるいは感圧微小球ベースの組成物である請求項 1 記載の光拡散性接着剤。

6. 前記フィルム形成性感圧接着剤母材が（メタ）アクリレート組成物、粘着性付与シリコン、粘着性付与スチレン - イソプレンあるいは粘着性付与スチレン - ブタジエンブロック共重合体である請求項 5 記載の光拡散性接着剤。

7. 前記感圧接着剤母材が約  $0.5 \mu\text{m}$  から約  $150 \mu\text{m}$  の直径を持つ感圧接着剤微小球である請求項 5 記載の光拡散性接着剤。

8. 前記感圧接着剤母材が非第三アルキルアルコール類のアルキル（メタ）アクリレートエステル類から供給されるポリマーであり、ここでアルコール類のアルキル基が 4 から 14 個の炭素原子を含んでいる請求項 6 記載の光拡散性接着剤。

9. 前記非第三アルキルアルコール類のアルキル（メタ）アクリレートエステル類がイソオクチルアクリレート、*n*-ブチルアクリレート、

2-エチルヘキシルアクリレートあるいはその混合物である請求項 8 記載の光拡散性接着剤。

10. 前記感圧接着剤母材が非第三アルキルアルコール類のアルキル（メタ）アクリレートエステル類から供給されるポリマーであり、ここでアルコール類の

アルキル基が4から14個の炭素原子を含んでいる請求項7記載の光拡散性接着剤。

11. 前記非第三アルキルアルコール類のアルキル(メタ)アクリレートエステル類がイソオクチルアクリレート、*n*-ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレートあるいはその混合物である請求項10記載の光拡散性接着剤。

12. 前記有機重合体微粒子が約0.5  $\mu\text{m}$ から約30  $\mu\text{m}$ の直径を持つ請求項1記載の光拡散性接着剤。

13. 前記有機重合体微粒子が、モノマーのフルオロアルキル置換基の鎖の長さおよび/または置換基の枝分れ度に応じて約1.34から約1.44の範囲の屈折率を持つフッ化アクリレートまたはメタクリレートモノマーから製造される請求項1記載の光拡散性接着剤。

14. 前記フッ化アクリレートまたはメタクリレートモノマーがペンタデカフルオロオクチルアクリレート、ウンデカフルオロヘキシルアクリレート、ノナフルオロペンチルアクリレート、ヘプタフルオロブチルアクリレート、オクタフルオロペンチルアクリレート、ペンタフルオロプロピルアクリレート、トリフルオロアクリレート、トリソフルオロイソプロピルメタクリレート、あるいはトリフルオロエチルメタクリレートである請求項13記載の光拡散性接着剤。

15. 前記有機重合体微粒子が脂環式、置換脂環式、芳香族、あるいは置換芳香族置換基を持つ、遊離基重合可能なモノマーから製造され、約1.49から約1.63の範囲の屈折率を持つ請求項1記載の光拡散性接着剤。

16. 前記遊離基重合可能なモノマーが3-メチルシクロヘキシルメタクリレート、4-メチルシクロヘキシルメタクリレート、2-メチルシクロヘキシルメタクリレート、ボルニルメタクリレート、シクロヘキシルメタクリレート、1-メチルシクロヘキシルメタクリレート、2-クロロシクロヘキシルメタクリレート、ベンジルメタクリレート、フェノキシメタクリレート、ポリフェニルメタクリレート、 $\alpha$ -メチルスチレン、スチレン、ビニルネオノネート、ハロゲン化メタクリレート類、2-クロロシクロヘキシルメタクリレート、2-ブロモエチルメタクリレートあるいはその混合物である請求項15記載の光拡散性接着剤。

17. 請求項1記載の光拡散性接着剤を含有する光学デバイス。

18. バックリング材料が請求項1の光拡散性接着剤の連続あるいは不連続層により少なくとも一つの主要な表面に被覆されている、バックリング材料を含有する光学デバイス。

19. 前記のバックリング材が適合性のある、あるいは柔軟なフィルムである請求項18記載の光学デバイス。

20. 前記の光拡散性接着剤が背面映写スクリーン用のフィルムの片面あるいは両面に適用されている光学デバイス。

## 【発明の詳細な説明】

## 光拡散性接着剤

## 技術分野

発明は光拡散性材料に関し、特に後方散乱の低い、光拡散性の良好な光拡散性接着剤に関する。

## 発明の背景

液晶ディスプレイや背面映写スクリーンのような情報ディスプレイにおいては、その効率的なオペレーションと強化された判読率は、しばしば光拡散光学構造に依存している。このような光拡散構造は前方散乱光の強度を大きく損失させずに光源から前方へ光を散乱することにより、これらのディスプレイにおいて重要な役割を果たしている。この高い透過率を持つ散乱光により、光源に向かって散乱、あるいは反射された入射光量が減少するので、これらのディスプレイは望ましいバックグラウンド輝度を持つ。このような「後方散乱」光の除去あるいは制限が、これらの光拡散構造を設計する上でのキーファクターである。

光拡散構造の設計における 1 つのアプローチは、硬い透明、あるいは半透明のプラスチックフィルムに粒子を充填するか、あるいは埋め込むことである。適正な大きさを持って調製され、プラスチックフィルムと共にフォーミュレートされる時、これらの粒子は入射光を散乱し拡散することができる。しかしながら、粒子によっては、使用すると入射光の全体的な輝度あるいは透過率を減じるような、ある種の望

ましくない、有害な光学的効果をもたらすものもある。例えば、酸化チタン粉末のようなある種の無機粒子、あるいはあまりにも小さい粒子（すなわち、入射光の波長オーダー）が光拡散構造で使用されると、高レベルの後方散乱のために輝度における大きな損失が生じることがある。逆に、入射光の波長に比して大直径を持つ粒子、および／または粒子の屈折率が連続プラスチックフィルムと同一であるか、あるいは極めて類似している場合は光拡散が殆ど起こらない。

さらに、粒子充填プラスチックフィルムの中には、光拡散層としては効率的であるけれども、フィルムを通る光の極性を変えるものもある。いくつかの構造、

例えば液晶ディスプレイでは、光拡散フィルムあるいは要素により、大きな光の偏光解消があればそれは画像品質の損失をもたらすことになる。

#### 発明の大要

簡単に述べれば、本発明の1つの局面において、屈折率 $n_2$ を持つ有機重合体微粒子を充填した屈折率 $n_1$ を持つ感圧接着剤母材の混合物を含有する光拡散性接着剤を提供するが、ここで母材と微粒子の屈折率差の絶対値、すなわち、 $|n_1 - n_2|$ はゼロより大きく、通常0.01から0.2の範囲である。母材の微粒子に対する重量比は、固形分基準で、約1:1から約50:1、好ましくは約4:1から約25:1である。

好都合なことに、この接着剤母材は水性でも溶媒性でもよいので、光学的性能をコントロールする上で接着剤をより柔軟に選択できる。さらに、接着剤母材はフィルム形成性でも微小球ベースのものであってもよい。本発明で使われる光拡散性微粒子はいろいろな重合方法を使って製造することができ、ユーザーには、微粒子の大きさ、組成、モフォロジーおよび全体的な特性をコントロールするための多くの機

会が与えられている。

さらに、粒子サイズ、粒子組成、屈折率、粒子充填量と他の特性との適切なバランスおよびパラメーターを調整することによって、意図する最終用途に従って光拡散性特性を調節できる。本発明はまた、他の偏光フィルム、反射基板あるいは他の光学部品へのかかる光拡散性接着剤の添付あるいは接着も提供する。これらの光拡散性材料は接着性であるので、光マネージメントデバイスの光学性能に害となりうる、基板への表面アタッチメントのためのラミネート用あるいはボンディング用にさらに接着剤層を使用する必要はない。また本発明はただ光を拡散するだけでなく、さらに柔軟である材料を供給する。

都合のよいことに、本発明の光拡散性接着剤は、入射光を大きく後方散乱したり、あるいは透過光を偏光解消したりすることはない。

#### 好ましい実施例の記載

本発明の光拡散性接着剤は屈折率 $n_2$ を持つ有機ポリマー微粒子を充填した屈

折率が $n_1$ の感圧接着剤母材混合物を含有するものであり、ここで母材と微粒子の屈折率差の絶対値、 $|n_1 - n_2|$ はゼロより大きく、通常0.01から0.2の範囲である。

母材対微粒子の重量比は、固形分基準で、約1:1から約50:1、好ましくは約4:1から約25:1である。多くのファクターが本発明の接着剤の光拡散特性に影響を与えるが、微粒子に対する母材の比率は重要なファクターである。一般に、微粒子に対する母材の比率が大きすぎると、十分に入射光を拡散するためには粒子の濃度が不十分となり、より厚いフィルムが必要となる。一方、微粒子濃度が母材の50%を越えると、輝度と透過率が悪化する。

接着剤の光拡散特性に影響を与える他のファクターには、例えば、微粒子の大きさ、母材と微粒子間の屈折率差、母材と微粒子間の屈折

率のこう配、基板上に塗布し、乾燥した時の光拡散性接着剤の厚さ、そして結晶化度、有機物としての、あるいは無機物としての特徴、吸着特性などの微粒子成分の本質的な特性がある。

この光拡散性接着剤層で光学的性質を得るためには、感圧接着剤母材の屈折率( $n_1$ )と微粒子充填剤の屈折率( $n_2$ )間の差の絶対値はゼロより大きく、通常0.01から0.2の範囲である。これらの成分の屈折率の値は、標準屈折率測定法(例えばASTMテスト法D542に従ってAbbe屈折計を使うなど)により直接得ることができるが、より都合よくは、種々の表にまとめられた重合体材料の屈折率データ(例えば重合体ハンドブック第三版、New York, John Wiley & Sons、1989年、pp. VI/451-VI/461)を参照することにより得られる。

この屈折率差の絶対値がゼロに近づくと、拡散性の悪いまたは非拡散の透明なあるいは殆ど透明な複合体が結果として生じる。この不十分な屈折率の差は、添加する粒子を増加することおよび/または接着層の厚さを増加することによって解決できることもある。しかしながら、これらの調整処置は接着層の輝度の減少という結果をもたらすこともある。

接着層は本来光拡散性である。すなわち、接着層は入射光線を曲げ、それでも

なおまだ接着層透過後に高レベルの透過率（一般に入射強度の約 80 %を超え、好ましくは約 85 %から約 95 %、最も好ましくは約 90 %から約 95 %）を保つことができる。さらに、これら接着剤の後方散乱は、典型的には約 20 %未満、好ましくは約 1 %から約 10 %の範囲である。

一般に、光拡散性材料は光源から前方へ一様に光を散乱する能力をもっている。散乱光の均質性はそのベンドアングルによって測定されるが、ここで「ベンドアングル」とは利得が軸上の値の  $1/3$  に低下

する視角のことである。ベンドアングルが大きいほど、散乱光の均一性が増す。しかしながら、通常ベンドアングルの高さは輝度（視感透過率）を犠牲にする。逆に、視感透過率における損失は極端な後方散乱光のせいであるともいえる。したがって、光拡散性材料の最適化は粒子濃度、屈折率差、拡散剤の厚さと粒子サイズ間のバランスに依存する。

感圧接着剤母材は室温、例えば、20℃から22℃、で乾燥粘着性を持つ接着剤材料と定義され、指あるいは手で押す以上の圧力を加えることなく接触するだけで様々な異なる表面にしっかりと接着し、十分に密着性および弾性を持つため、その乾燥粘着性にもかかわらず、指で取り扱うことができ、そして残留物を残さずに滑らかな表面から取り除くことができる（感圧テープ評議会テスト方法、1985、5 ページ）。かかる接着剤は本質的に粘着性のものであっても、また相溶性の粘着性付与樹脂を配合した弾性材料であってもよい。さらに、これらの接着剤母材はフィルム形成性の組成物であってもまた粘着性微小球であってもよい。感圧接着剤母材は、溶液重合、懸濁重合、乳化重合およびバルク重合を含むさまざまな重合方法によって形成できる。有用な感圧接着剤母材組成物としては、（メタ）アクリレート類、粘着性付与シリコーン類、粘着性付与スチレン - イソプレンあるいは粘着性付与スチレン - ブタジエンブロック共重合体をあげることができるが、これらに限定されるわけではない。

一つの好ましい種類の感圧接着剤は、フィルム形成性（メタ）アクリレート組成物であり、これは入手が楽であること、製造およびフォーミュレーションが簡単であること、より優れた光学的性質と安定性を持つことなどによる。母材の選



択において考慮することは、この母材と微粒子との相溶性である。例えば、水を媒体とする（メタ）アクリルエマルジョンあるいはラテックスを含有する母材は、懸濁あるいは

はエマルジョン法によって製造した水ベースの微粒子に対して特に相溶性がある。同様に、溶媒を媒体とする母材は非水性の媒体から製造した微粒子と、より高い相溶性をもつ傾向がある。

もう1つの好ましい種類の感圧接着剤母材は、直径が約 $0.5\mu\text{m}$ から約 $150\mu\text{m}$ 、好ましくは約 $1\mu\text{m}$ から約 $70\mu\text{m}$ 、最も好ましくは約 $2\mu\text{m}$ から約 $30\mu\text{m}$ である感圧接着剤微小球である。このような微小球母材は懸濁、分散、直接エマルジョンおよび修正エマルジョン法によって製造できる。好ましくは、感圧接着剤微小球母材は例えば、米国特許第3,691,140号(Silver);第4,166,152号(Baker et al.);第4,495,318号(Howard);第4,786,696号(Bohnel);第4,988,467号(Delgado);第5,045,569号(Delgado);およびPCT出願No.WO94/13751(Delgado et al.)に記載の懸濁重合法にしたがって製造される。

好ましい懸濁重合法では、有機重合体微小球は、まず例えば、メタクリレートモノマーなどの疎水性モノマーと油溶性開始剤を含有する油相が、少なくとも一つの当業者に知られている表面活性剤のような表面活性剤や懸濁材安定剤を含有する水性媒体中に含まれている水中油型エマルジョンを形成することによって製造される。これらの懸濁重合プロセスは他の遊離基反応的な開始材料を含んでもよく、通常はいろいろな乳化剤、安定剤、界面活性剤の存在下で、および／または微小球の形成を誘発しその凝固を妨ぐ特定のプロセス条件のもとで行われる。都合のよいことに、微小球の母材を微粒子と組み合わせると位置変更の可能な光拡散性接着剤を形成できる。

好ましい感圧接着剤母材フォーミュレーションは通常アルキル（メタ）アクリレートモノマー類から供給される。特に好ましいモノマーは非第三アルキルアルコール類の単官能性不飽和（メタ）アクリレートエステル類である。これらのアルコール類のアルキル基は通常4か

ら14個の、好ましくは4から10個の炭素原子を含んでいる。これらの（メタ）アクリレートエステル類のホモポリマーは一般に約10℃未満のガラス遷移温度を持っている。

有用なモノマーの例としては、s-ブチルアクリレート、n-ブチルアクリレート、イソアミルアクリレート、2-メチルブチルアクリレート、4-メチル-2-ペンチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、イソオクチルアクリレート、イソノニルアクリレート、イソデシルメタクリレート、ドデシルアクリレート、テトラデシルアクリレート、およびその混合物があげられるが、これらに限定されるわけではない。これらの中でも、イソオクチルアクリレート、n-ブチルアクリレートおよび2-エチルヘキシルアクリレートが好ましい。

その結果生じる重合体が、約10℃未満のガラス転移温度と、適切な感圧接着性と光学的性質を持つかぎりにおいて、得られるホモポリマーが約-20から0℃を上回るガラス遷移温度を持つt-（メタ）アクリレートあるいは他のビニルモノマー、例えばエチルアクリレート、t-ブチルアクリレート、イソボルニルアクリレート、ブチルメタアクリレート、ビニルアセテート、アクリロニトリルなどを（メタ）アクリレートモノマー類の1つあるいはそれ以上と共に使用してもよい。

遊離基重合可能な極性モノマーもまた本発明の母材において有用である。これらの極性モノマーはやや油溶性であり、かつ水溶性である。適した極性モノマーの代表的な例としては、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、クロトン酸、マレイン酸、フマル酸、スルホエチルメタクリレート、N-ビニルピロリドン、N-ビニルカプロラクタム、2-ビニル-4,4-ジメチル-2-オキサゾリジノン、t-ブチルアクリルアミド、ジメチルアミノエチルアクリルアミド、N-オクチルアクリルアミド、およびメタクリル酸ナトリウム、アクリル酸アンモニウム、ア

クリル酸ナトリウム、トリメチルアミンp-ビニルベンズイミド、4,4,9-トリメチル-4-アゾニア-7-オキソ-8-オキサデス-9-エン-1-スルホネート、N,N-ジメチル-N-(ベーターメタクリロキシーエチル)アンモニウムプロピオネートベタイン、トリメチルアミンメタクリルイミド、1,1-ジメチル-1-

(2,3-ジヒドロキシプロピル)アミンメタクリルイミド、その混合物などのイオン性モノマーからなる群から選択されるものがあげられるが、これらに制限されるわけではない。好ましい極性モノマーとしては、モノオレフィン性モノカルボン酸、モノオレフィン性ジカルボン酸、アクリルアミド、N-置換アクリルアミド類、その塩およびその混合からなる群から選択される物が含まれる。かかる好ましい極性モノマーの例としては、アクリル酸、アクリル酸ナトリウム、N-ビニルピロリドンとその混合物からなる群から選択されるものをあげることができるが、これらに限定されるわけではない。

これらの接着剤母材は架橋されていても、されていなくてもよい。好ましい(メタ)アクリレート母材は多官能性架橋剤を使って架橋することができる。有用な多官能性架橋剤にはブタンジオールジアクリレートのようなジオール類のアクリル酸あるいはメタクリル酸エステル類、グリセリンのようなトリオール類およびペンタエリトリールのようなテトラオール類からなる群から選択される物をあげることができるが、これらに限定されるわけではない。その他の有用な架橋剤には、置換あるいは未置換のジビニルベンゼンなどのポリビニル架橋剤および Ebecryl 270 (商標) と Ebecryl 230 (商標) (それぞれ重量平均分子量 1500 と、重量平均分子量 5000 のアクリル化ウレタンであり、共に Radcure Specialties 製) およびその混合物などの二官能性ウレタンアクリレートからなる群から選択される物をあげることができるが、これらに限定されるわけではない。

架橋剤は使用に際し、既知の用途および感圧接着性の保持に応じたレベルで添加される。考慮されるファクターには、架橋剤の分子量、多官能度、架橋剤濃度などが含まれるが、これらに限定されるわけではない。また別法としては、架橋は、ガンマ線あるいは電子線放射のような、適切なエネルギー源へさらすことによって生じる。

本発明の光拡散性接着剤の微粒子は重合体であって懸濁重合、分散重合、直接乳化重合および修正乳化重合などの、多数の既知の技法によって製造することができる。微粒子は通常約 0.5  $\mu\text{m}$  から約 30  $\mu\text{m}$ 、好ましくは約 1  $\mu\text{m}$  から約 15

$\mu\text{m}$ 、最も好ましくは約  $2\ \mu\text{m}$  から約  $10\ \mu\text{m}$  の直径を持っている。

典型的に約 1.46 から約 1.48 の屈折率を持つ好ましいアクリレート感圧接着剤母材との屈折率差を満たすためには、これより幾分低い、あるいは高い屈折率を持つ有機重合体の微粒子が必要不可欠である。これらの好ましいアクリレート感圧接着剤母材より十分に低い屈折率を持っている微粒子はフッ化アクリレートあるいはメタアクリレートモノマーから製造することができる。このようなフッ化（メタ）アクリレートモノマーは、これらのモノマーのフルオロアルキル置換基の鎖の長さおよび／または枝分れ度に応じて、約 1.34 から約 1.44 の範囲の屈折率を持つポリマーを形成する。有用なフッ化アクリレートあるいはメタアクリレートモノマーの例としては、ペンタデカフルオロオクチルアクリレート、ウンデカフルオロヘキシルアクリレート、ノナフルオロペンチルアクリレート、ヘプタフルオロブチルアクリレート、オクタフルオロペンチルアクリレート、ペンタフルオロプロピルアクリレート、トリフルオロアクリレート、トリイソフルオロイソプロピルメタクリレートおよびトリフルオロエチルメタクリレートをあげることができる。逆に、これらの好ましいアクリレート感圧接着剤母材より十分高い屈折率を持っている微粒子は、好ましくは

脂環式、置換脂環式、芳香族、あるいは置換芳香族置換基を持つ遊離基重合可能なモノマーから製造することができる。かかる遊離基重合可能なモノマーのホモポリマーは一般に約 1.49 から約 1.63 の範囲の屈折率を持つ。有用な遊離基重合可能なモノマーの例を上げると、3-メチルシクロヘキシルメタクリレート、4-メチルシクロヘキシルメタクリレート、2-メチルシクロヘキシルメタクリレート、ボルニルメタクリレート、シクロヘキシルメタクリレート、1-メチルシクロヘキシルメタクリレート、2-クロロシクロヘキシルメタクリレート、ベンジルメタクリレート、フェノキシメタクリレート、ポリフェニルメタクリレート、 $\alpha$ -メチルスチレン、スチレン、ビニルネオノネート、ハロゲン化メタクリレート類、2-クロロシクロヘキシルメタクリレート、2-ブロモエチルメタクリレートなどがある。

これらの微粒子は架橋されていてもされてなくてもよい。好ましい（メタ）ア

クリレート微粒子は多官能性の架橋剤を使って架橋できる。有用な多官能性架橋剤には、ブタンジオールジアクリレートのようなジオール類のアクリルあるいはメタクリルエステル、グリセリンのようなトリオール類とペンタエリトリールのようなテトロール類から成る群から選択されるものをあげることができるが、これらに限定されるわけではない。他の有用な架橋剤には置換、および未置換のジビニルベンゼンのようなポリビニル架橋剤、Ebecryl 270（商標）やEbecryl 230（商標）（それぞれ重量平均分子量1500と重量平均分子量5000のアクリル化ウレタンであり、共にRadcure Specialties製）およびその混合物などの二官能製ウレタンアクリレートからなる群から選択されるものが含まれるが、これらに限定されるわけではない。架橋剤は使用に際し、既知の用途および感圧接着性の保持に応じたレベルで添加される。考慮されるファクターには、架橋剤の分子量、多官能度、架橋剤濃度などが含まれるが、これらに限

定されるわけではない。また別法としては、架橋は、ガンマ線あるいは電子線放射のような、適切なエネルギー源へさらすことによって生じる。

感圧接着剤母材はナイフコーティングあるいはメイヤーバーコーティングあるいは押し出しダイを使用するなど従来の塗布技法を用いて、適当な可撓性のあるいは非可撓性のバックング材料の上に塗布できる。

水性、あるいは溶媒ベースのコーティングのために適したバックング材料としては、紙、プラスチックフィルム、酢酸セルロース、エチルセルロース、合成、あるいは天然材料から作られた織布あるいは不織布、金属、メタライズされたポリマーフィルム、セラミックシート材などからなる群から選択される物があるが、これらに限定されるわけではない。プライマーあるいはバインダーをその上に使用してもよい。

光拡散性接着剤の感圧接着性は粘着性付与樹脂および／または可塑剤の添加によって変えることができる。また着色剤、水酸化ナトリウムなどの中和剤や充填剤、安定剤、および種々の重合体添加剤などの種々の他の成分を含有することも本発明の範囲に含まれる。これらの追加成分はこれらの成分の周知の使用と一致した量で感圧接着剤母材に加えられる。

本発明の光拡散性接着剤を適当なバックング材および基板と共に使用することにより、いろいろな光学素子を得ることができる。このような素子にはサインボード、照明カバー、パーティション、装飾用フィルム、背面映写スクリーン用フィルム、コンフォーマブルフィルム、天窓などがあるが、これらに限定されるわけではない。前述の物品リストは決して網羅的なものではなく、本発明の範疇を制限すると解釈されるべきではない。

本発明の目的および利点がさらに下記の実施例によって示されるが、これらの例で述べた特定の材料とその量は、他の条件や細部と同様に不当に本発明を制限すると解釈されるべきではない。そうでない旨が述べられているか、明らかである場合を除き、すべての材料は市販されているか、または当業者に知られたものである。

#### テスト方法

##### ベンドアングル

光拡散性接着剤によって起こされる軸上の利得の減衰と角伝搬を HeNe レーザーを透過型配置で使用して測定した。25ミリの口径を持つ Beamsan スキャニングシステムを検出器として用い、垂直面内で散乱する光線を走査した。ベンドアングルは利得が軸上の値の  $1/3$  に低下する視角であると定義される。

##### 視感透過率

光拡散性接着剤層の視感透過率を Perkin-Elmer Lambda-19 分光光度計を透過モードで使用して測定した。

##### 偏光解消

光拡散性接着剤の偏光解消能力を一つの二色性偏光子を光線入射スリットに置き、他のシートを光線が集められる積分球の直前においた Perkin-Elmer Lambda-19 分光光度計を使用して測定した。光拡散性接着剤は直交させた偏光子の間に置いた。もし光拡散性接着剤が光の偏光状態に影響を与えるなら、透過度の増加が観察されるはずである。可視範囲 (400-700 nm) にわたる全吸光率からの平均偏差を報告する。

### 後方散乱

光拡散接着剤における後方散乱特性を Perkin-Elmer Lambda-19 分光光度計で調べた。サンプルは反射モードに設置し、黒色のバックングを後ろに置いて透過光を吸収させた。積分球を使用して鏡面反射と拡散反射の両方を測定した。表面反射は報告値から差し引いてある。後方散乱光は可視範囲 (400-700 nm) にわたり、波長の関数として測定した。その平均偏差を報告する。

### 屈折率

Metricon プリズムカプラーを使用し、632.8 nm の波長においてこれらの接着剤の屈折率を決定した。屈折率は x, y および z 方向で測定されたが、すべての方向で同一であることがわかった。

### 有機重合体微粒子の製造

#### 実施例 1 懸濁重合法による水性ポリ (スチレン) 粒子の製造

6 g の Standapol A (商標、Hercules 社から市販されているラウリル硫酸アンモニウム) および 3 グラムのポリ (ビニルアルコール) を 240 g の脱イオン水に溶解した。2 グラムの Lucidol 75 (商標、Elf Atochem 製 7.5 % の過酸化ベンゾイル) を 150 g のスチレンに溶かし上記の水性混合物に加えた。上記の混合物を、スチレンモノマーの小滴の大きさが 1 ミクロン以下になるように Gaulin ホモジナイザーで乳化した。このエマルジョンをついで 1 リットルの反応器に入れ、300 rpm で攪拌し、そして 70 °C で 16 時間加熱した。得られた粒子の大きさは、光学顕微鏡で見ると、およそ 2  $\mu\text{m}$  であって、屈

折率は 1.59 であった。

#### 実施例 1 A 懸濁重合法による水性ポリ (NEO-9) 粒子の製造

7 g の Standapol A (商標、Hercules 社から市販されているラウリル硫酸アンモニウム) および 1g のポリ (ビニルアルコール) を 390 g の脱イオン水に溶解した。1g のラウリルペルオキシド、2.1 g のアクリル酸および 2.1 g の 1,6-ヘキサジオールジアクリレートと 205.8 g のビニルネオノネート (ユニオンカーバイド社から「NEO-9」の商品名で市販されている) に溶解し、ついで上記の水性混合物に加えた。上記の混合物を、スチレンモノマーの小滴の大

きさが1  $\mu\text{m}$ 以下になるようにGaulinホモジナイザーで乳化した。このエマルジョンをついで0.5リットルの反応器に入れ、300rpmで攪拌し、60℃で8時間加熱した。得られた粒子の大きさは、光学顕微鏡で見ると、およそ2  $\mu\text{m}$ であって、屈折率は1.49であった。

実施例1B 懸濁重合法による水性ポリ(ベンジルメタクリレート)粒子の製造

5gのStandapol A(商標、Hercules社から市販されているラウリル硫酸アンモニウム)および1.5gのPVP-K90(GAFより市販されているポリ(ビニルピロリドン))を480gの脱イオン水に溶解した。0.47gのラウリルペルオキシドを128gのベンジルメタクリレートに溶解し、ついで上記の水性混合物に加えた。上記の混合物を、スチレンモノマーの小滴の大きさが1ミクロン以下になるようにGaulinホモジナイザーで乳化した。このエマルジョンをついで1リットルの反応器に入れ、300rpmで攪拌し、そして65℃で5

時間加熱した。得られた粒子の大きさは、光学顕微鏡で見ると、およそ2  $\mu\text{m}$ であって、屈折率は1.57であった。

実施例2 分散重合法による溶媒性ポリ(スチレン)粒子の製造

9gのPVP-K15(GAF社より市販されているポリ(ビニルピロリドン)安定剤)および1.5gのAersol OT100(商標、Aerican Cyanamidより市販されているジオクチルスルホコハク酸ナトリウム)を195gのエタノールに溶解した。2.1gのVazo64(商標デュポン製2,2'-アゾビス(イソブチロニトリル))および1.05gの1,6-ヘキサンジオールジアクリレートを105gのスチレンに溶解した。この二つの混合物を合わせ、0.5リットルの反応器に加えて、250rpmで攪拌し、そして70℃で16時間加熱した。得られた粒子の大きさは、光学顕微鏡で見ると、およそ9  $\mu\text{m}$ であって、屈折率は1.59であった。

下記の表1に光拡散性粒子の屈折率をまとめる。



表 1

| ポリマー             | $n_d$ |
|------------------|-------|
| ポリ (スチレン)        | 1.59  |
| ポリ (ベンジルメタクリレート) | 1.568 |
| ポリ (NEO-9)*      | 1.49  |

\* NEO-9はユニオンカーバイド製C 9分枝ビニルエステルである。

#### 感圧接着剤母材微小球の製造

##### 実施例 3 懸濁重合法による感圧接着剤母材微小球の製造

1 g のドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウムと 2.4 g のスチレンスルホン酸ナトリウム (NaSS) を 360 g の脱イオン水に溶解した。7.2 g のポリ (エチレンオキシド) 16 アクリレート (PEO) と 1.05 g の Lucidol 75 (商標、Elf Atochem 製 75% の過酸化ベンゾイル) を 230.4 g のイソオクチルアクリレート (IOA) に溶解した。上記混合物を、小滴の大きさが  $1\ \mu\text{m}$  以下になるように Gaulin ホモジナイザーで乳化した。このエマルジョンをついで 1 リットルの反応器に入れ、400 rpm で攪拌し、65℃ で 4 時間加熱した。この 96/3/1 IOA/PEO/NaSS から生じる粒子は、光学顕微鏡で観察したところ、およそ  $2\ \mu\text{m}$  の大きさで、屈折率は 1.47 であった。

##### 実施例 4 懸濁重合法による感圧接着剤母材微小球の製造

実施例 3 に従い、重量比 97/2/2 IOA/PEO/AA のアクリル酸 (AA) 含有微小球を製造した。得られた微小球は、光学顕微鏡で観察したところ、およそ  $2\ \mu\text{m}$  の大きさで、屈折率は 1.47 であった。

##### 実施例 5 懸濁重合法による感圧接着剤母材微小球の製造

実施例 3 に従い、重量比 96/2/2 IOA/PEO/HBA のヒドロキシブチルアクリレート (HBA) 含有微小球を製造した。得られた微小球は、光学顕微鏡で観察したところ、およそ  $2\ \mu\text{m}$  の大きさで、屈折率は 1.469 であった。

#### 市販されている感圧接着剤母材

表 2 に以下の実施例で使用したアクリルエマルジョン感圧接着剤母材の商品名、供給元および屈折率をまとめる。

表 2

| 母材 | 商品名           | 供給元              | $n_a$ |
|----|---------------|------------------|-------|
| A  | Rhodotak 300  | ローヌ＝ブーラン         | 1.468 |
| B  | Morstik 214   | Morton Adhesives | 1.47  |
| C  | UCAR 965      | ユニオン カーバイド       | 1.494 |
| D  | Flexcryl 1625 | エアープロダクツ         | 1.471 |

実施例 6-9 ポリ（スチレン）微粒子と組み合わせたアクリル性エマルジョン

感圧接着剤母材を使用する光拡散性接着剤組成物

実施例 1 の有機重合体微粒子 10 重量%に数種類のアクリル性エマルジョン感圧接着剤母材を混合し、一連の光拡散性接着剤組成物を製造した。混合した後、光拡散性接着剤組成物を 4 mil（ウェット）の厚みで PET 上に塗布し、60℃で 10 分間乾燥した。乾燥後、光拡散性接着剤組成物の視感透過率、ベンドアングル、後方散乱および偏光解消を上記のように測定し、これらの測定の結果を表 3 a と表 3 b に報告する。

表 3a

| 実施例 | 母材<br>(重量%) | 微粒子<br>(重量%) | 視感透過率  |
|-----|-------------|--------------|--------|
| 6   | A(90)       | 実施例 1(10)    | 87.2 % |
| 7   | B(90)       | 実施例 1(10)    | 86.6 % |
| 8   | C(90)       | 実施例 1(10)    | 91.5 % |
| 9   | D(90)       | 実施例 1 (10)   | 89.4 % |

表 3b

| 実施例 | ベンド<br>アングル | 後方散乱<br>(%) | 偏光解消<br>(% 吸光率) |
|-----|-------------|-------------|-----------------|
| 6   | 4.68        | 4.65        | 7.36            |
| 7   | 5.75        | 5.27        | 0.57            |
| 8   | 5.05        | 1.75        | 1.62            |
| 9   | 5.0         | 4.82        | 0.67            |

実施例 10-13 および比較例 C-1 微小球感圧接着剤母材とポリ（スチレン

）微粒子を組み合わせて使用した光拡散性接着剤組成物

実施例 1 0 - 1 3 は実施例 1 の有機重合体微粒子を実施例 3 の感圧接着剤微小球を含有する母材中にさまざまな重量比で混合して使用する例を示す。微粒子／母材混合物は、実施例 6 - 9 で記載したように混合、塗布および乾燥され、光拡散性接着剤組成物の視感透過率、ベンドアングル、後方散乱および偏光解消を上記に記載のように測定した。これらの測定の結果と実施例 3 の微小球母材のみを含有する被覆に対して同様に行った測定結果（比較例 C 1）を表 4 a と表 4 b に報告する。

表 4a

| 実施例 | 母材<br>(重量%) | 微粒子<br>(重量%) | 視感透過率  |
|-----|-------------|--------------|--------|
| 10  | 実施例 3(95)   | 実施例 1(5)     | 90.4 % |
| 11  | 実施例 3(93)   | 実施例 1(7)     | 90.3 % |
| 12  | 実施例 3(90)   | 実施例 1(10)    | 88.7 % |
| 13  | 実施例 3(80)   | 実施例 1(20)    | 84.2 % |
| C1  | 実施例 3(100)  | -            | 92.6 % |

表 4b

| 実施例 | ベンド<br>アングル | 後方散乱<br>(%) | 偏光解消<br>(% 吸光率) |
|-----|-------------|-------------|-----------------|
| 10  | 3.7         | 2.76        | 1.4             |
| 11  | 4.55        | 2.12        | 0.53            |
| 12  | 5.73        | 4.76        | 1.52            |
| 13  | 6.95        | 6.55        | 0.24            |
| C1  | 2.4         | 0.76        | 1.27            |

実施例 1 4 - 1 6 および比較例 C - 2 - C - 4 種々の有機重合体微粒子と組み合わせて微小球感圧接着剤母材を使用した光拡散性接着剤組成物

実施例 1 4 - 1 6 は実施例 1、1 A、および 1 B の有機重合体微粒子を実施例 3 - 5 の感圧接着剤微小球を含有する母材中にさまざまな重量比で混合して使用した例を示す。微粒子／母材混合物は実施例 6 - 9 で記載したように混合、塗布

および乾燥され、光拡散接着剤組成物の視感透過、ベンドアングル、後方散乱および偏光解消を上記に記載のように測定した。これらの測定の結果と実施例 3 - 5 の微小球母材のみを含有する被覆に対して同様に測定を行った結果（比較例 C 2 - C 4）を表 5 a と表 5 b に報告する。

表 5a

| 実施例 | 母材<br>(重量%) | 微粒子<br>(重量%) | 視感透過<br>率 |
|-----|-------------|--------------|-----------|
| 14  | 実施例 3(91)   | 実施例 1A(9)    | 93.1%     |
| C2  | 実施例 3(100)  | 実施例 1A(0)    | 92.6%     |
| 15  | 実施例 4(96)   | 実施例 1(4)     | 94.4%     |
| C3  | 実施例 4(100)  | 実施例 1 (0)    | 93.4%     |
| 16  | 実施例 5(70)   | 実施例 1B (30)  | 83.5%     |
| C4  | 実施例 5(100)  | 実施例 1B       | 92.7%     |

表 5b

| 実施例 | ベンド<br>アングル | 後方散乱<br>(%) | 偏光解消<br>(% 吸光率) |
|-----|-------------|-------------|-----------------|
| 14  | 2.52        | 0.91        | 4.4             |
| C2  | 2.40        | 0.76        | 1.27            |
| 15  | 3.90        | 1.13        | 2.4             |
| C3  | 2.60        | 1.11        | 5.0             |
| 16  | 6.40        | 5.95        | 7.63            |
| C4  | 2.3         | 1.15        | 4.27            |

実施例 1 7 - 1 9 と比較例 C 5 - C 7 有機重合体微粒子および無機重合体微粒子と組み合わせた溶媒性アクリル感圧接着剤母材を使用する光拡散性接着剤組成物

この一連の実施例は、無機粒子（二酸化チタン）の使用により、有機重合体微粒子を使用した場合に比べ、得られた光拡散性接着剤組成物において全吸光率（偏光解消）と後方散乱においてより高い偏差が生じたことを示すものである。光拡散性接着剤を実施例 2 の分散重合

ポリ（スチレン）粒子と Ashland Chemicals から市販されている、屈折率 1.468 の溶媒ベースのアクリル性感圧接着剤である Aroset 1085（商標、感圧接着剤母材）に 3 つの異なる粒子濃度で加えた二酸化チタン粒子とから製造した。微粒子／母材混合物は混合物をリリースライナー上に塗布したことを除き実施例 6-9 で記載したように混合、塗布および乾燥した。乾燥後、光拡散性接着剤組成物の後方散乱および偏光解消を上に記載したように測定した。これらの測定結果を表 6 に報告する。

表 6

| 実施例 | 母材<br>(重量%) | 微粒子<br>(重量%)          | 後方散乱<br>(%) | 偏光解消<br>(% 吸光率) |
|-----|-------------|-----------------------|-------------|-----------------|
| 17  | 95          | 実施例 1 (5)             | 11.18       | 6.32            |
| C5  | 95          | TiO <sub>2</sub> (5)  | 18.44       | 9.18            |
| 18  | 90          | 実施例 1 (10)            | 13.82       | 5.38            |
| C6  | 90          | TiO <sub>2</sub> (10) | 29.09       | 10.19           |
| 19  | 80          | 実施例 1 (20)            | 18.44       | 9.18            |
| C7  | 80          | TiO <sub>2</sub> (20) | 35.57       | 14.89           |

本発明の範囲と原則から外れることなく、本発明の種々の修正および変更が可能であることが当業者には明白であろう。本発明は、上記に明らかにされた例示的实施例に不当に限定されるものではないことを理解されたい。すべての出版物と特許は、あたかも各出版物あるいは特許がそれぞれとりたてて、また個別に、参照として含まれていると明記されている場合と同程度に、ここに参照として含まれている。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.  
PC/US 96/10423

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 6 C09J7/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 6 C09J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| X, P      | DATABASE WPI<br>Section Ch. Week 9541<br>Derwent Publications Ltd., London, GB;<br>Class A81, AN 95-317735<br>XP002013030<br>& JP, A, 07 216 328 (KIMOTO KK) , 15 August<br>1995<br>see abstract | 1-12.<br>15-20        |
| A         | US, A, 4 931 347 (SLOVINSKY MANUEL ET AL) 5<br>June 1990<br>see claims   | 1-20                  |

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

10 September 1996

Date of mailing of the international search report

02.10.96

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2180 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Oudot, R

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International Application No

PCT/US 96/10423

| Patent document<br>cited in search report | Publication<br>date | Patent family<br>member(s) | Publication<br>date |
|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| US-A-4931347                              | 05-06-90            | NONE                       |                     |

フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

C 0 9 J 175/16

183/04

G 0 2 B 5/02

F I

C 0 9 J 175/16

183/04

G 0 2 B 5/02

B

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(KE, LS, MW, SD, SZ, UG), UA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), AL, AM, AT, AU, AZ, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, HU, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, UZ, VN

(72)発明者 アウダーカーク, アンドリュー ジェイ.  
アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427,  
セントポール, ポスト オフィス ボックス 33427